

特許願 (B)
登録未定

(2,000円)

昭和47年9月13日

特許庁長官 三宅幸一郎

1. 発明の名前 CC1(C)CNC2=C1SC(=O)N(C)C2
殺虫農薬用

2. 発明者
住 所 ドイツ国グンバーダル・エルバーフエルト・
ブリンクエンストラße 10
氏 名 ヘルトムント・ウォルワエーバー(443 8)

3. 特許出願人
住 所 ドイツ国レーフエルクーザン (会員なし)

名 前 バイエル・アタチエングゼルシャフ
(氏名)

代表者 ロゼフ・シートツクハウゼン
41

国 旗 ドイツ国

4. 代理人
住 所 東京都港区赤坂1丁目9番15号
日本自動車会館
氏 名 (0373) 井端 小田 島 三吉
電話 585-2256

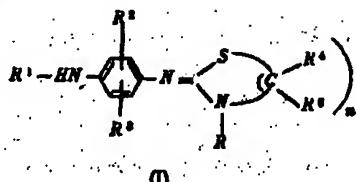
明細書

1. (発明の名称)

寄生虫農薬用

2. (特許請求の範囲)

一般式



(式中、Rは直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキル基(これは任意にヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい)であり、そして

⑯ 日本国特許庁

公開特許公報

⑮ 特開昭 48-36169

⑯ 公開日 昭48(1973)5.28

⑰ 特願昭 47-91344

⑯ 出願日 昭47(1972)9.13

審査請求 未請求 (全41頁)

序内格理番号

6762 44
6224 44

⑯ 日本分類

16 E351
30 B61

R¹は水素原子又は直鎖もしくは枝分れし

たアルキルもしくはアルケニル基(これは

任意にアルコキシ基により置換されていて

よい)又は-COH¹もしくは-SO₂H¹基(

ここでR¹は水素原子又は直鎖もしくは枝

分れしたアルキル、アルケニル、アルキニ

ル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アル

キニルオキシ、アルコキシアルキルオキシ

もしくはアルコキシアルキル基(これは任

意にヘロゲン、トリフルオロメチル、エト

リル、水酸、アシルオキシ、アルコキシ又

はオキシ基により置換されていてもよい)。

又はシクロアルキル、シクロアルケニルもしくはシクロアルカジエニル基（これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）、又はシクロアルキルアルキル、ベンゾシクロアルキルアルキル、テトラヒドロフルル、テトラヒドロフルフルアルキルもしくはテトラヒドロビチル基（これは任意にアルキル基により置換されていてもよい）、又はトリフルオロメチル基、又はカルバロコキシアルキル基、又はシクロアルキルアルコキシ基、又はシクロアルコキシ基、又はテトラヒドロブチル基

上のアルキル基により置換されていてもよい）又はブリルアルキル、チエニルアルキル、インドリルアルキル、ブリルアルキルオキシもしくはチエニルアルコキシ基（これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）、又はチエニルアルキル基（ここでアルキル部分は水酸、アシルオキシ又はアルコキシ基により置換されている）であり、そしてR¹は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基、又はアラルキル、シクロアルキルもしくはシクロアルキルアル

ルアルコキシ基又はブエニルアルコキシ、フェノキシアルコキシ、フェノキシ、フェニルアルキル、フェニル、フェニルアルケニルもしくはナフチル基（ここで芳香族環は任意に1個もしくはそれ以上のアルキル、アルケニル、アルコキシ、水酸、アシルオキシ、ニトロ、タロル、ブロム、フルオロ、トリフルオロメチル、ニトリル、カルバトキシ、アルキルスルホニル、アシルアミノもしくはアルキルスルホニルアミノ基により置換されていてもよい）、又は複素芳香族環系（これは任意に1個もしくはそれ以

キル基である）であり。

R²及びR³は同一であつても又は異なるつてもよくそしてそれぞれが水素原子、又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニルもしくはアルコキシ基、又はヘロゲン、ニトリルもしくはトリフルオロメチル基であり。

R⁴及びR⁵はそれぞれ水素原子又はアルキル基であり、そして

R⁶は2又は3である。）

02-（アミノフェニルイミノ）-3-アザ-1-チア-シクロアルカソまたはその塩を含有してなる寄生虫殺虫剤。

（発明の詳細な説明）

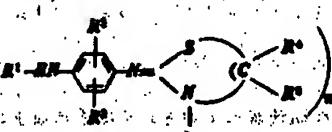
本発明はなる程の新規な3-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-チオ-シクロアルカン、それらの製造方法及びそれらの医薬、特に寄生虫抑制用、好適には駆虫剤としての使用に関するものである。

3-フェニルイミノ-3-アザ-1-チオ-シクロアルカンが薬理学的作用、例えば供給、血圧低下及び中枢作用、を有しているということはすでに開示されている（E. ネイラー（Neyer）及U. K. マティセリ（Matuselli）、Bell. 1961, 960; 英特許63/2430）。これらの化合物に就いて薬理学的活性は特にフェニル基のO-置換と関係している。しかししながらこれらの化合物は駆虫作用は有していない。

被分離したアルキル、アルケニル、アルキノル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アルキノルオキシ、アルコキシアルキルオキシもしくはアルコキシアルキル基（これは任意にヘロゲン、トリフルオロメチル、ニトロ、トリル、水酸、アシルオキシ、アルコキシ又はセオキシ基により置換されていてもよい）、又はシクロアルキル、シクロアルキノルもしくはシクロアルカリフェニル基（これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）又はシクロアルキルアルキル、ベンゾシクロアルキルアルキル、アラビジカルもしくはアルキルスルホニルアルキル基（これは任意にアルキル基により置換されていてもよい）又は複数芳

開明48-36169(3)

本発明は下記の一概式の3-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-チオ-シクロアルカン又はそれらの基である化合物を提供する：



（式中、Rは直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキノル基（これは任意にヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい）であり、

Xは水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基（これは任意にアルコキシ基により置換されていてもよい）。又は-COHもしくは-CH2OH基（ここでR'は水素原子又は直鎖もしくは

被分離したアルキル、アルケニル、アルキノル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アルキノルオキシ、アルコキシアルキルオキシもしくはアルコキシアルキル基（これは任意にヘロゲン、トリフルオロメチル、ニトロ、トリル、水酸、アシルオキシ、アルコキシ又はセオキシ基により置換されていてもよい）、又はシクロアルキル、シクロアルキノルもしくはシクロアルカリフェニル基（これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）又はシクロアルキルアルキル、ベンゾシクロアルキル基（これは任意にアルキル基により置換されていてもよい）又は複数芳

族基系(これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい)又はフリルアルキル、チエニルアルキル、インドリルアルキル、フリルアルキルオキシもしくはチエニルアルコキシ基(これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい)、又はフェニルアルキル基(ここでアルキル部分は任意に水酸、アシルオキシ又はアルコキシ基により置換されていてもよい)であり、そして

R' は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基又はアラルキル、シクロアルキルもしくはシクロアルキル基である]であり。

R' 及び R'' は同一であつても又は異なるてもよくそしてそれぞれが水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニルもしくはアルコキシ基、又はヘロゲン、エトリルもしくはトリフルオロメチル基であり、

R'' 及び R''' はそれぞれ水素原子又はアルキル基であり、そして

•は2又は3である。)

本発明における化合物は強い寄生虫殺虫、特に駆虫、作用を示す。

本発明の2-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-チア-シクロアルカンは塩基性の性質を有しており、そして遊離塩基として又はそれらの塩の形で使用できる。

アルキル基 R 、 R' 、 R'' 及び R''' 並びにアルコキシ基 R 及び R' のアルキル部分は好適には1~5個の、特に1又は2個の、炭素原子を含有しておりそしてアルケニル及びアルキル基及び R'' は好適には3~6個の炭素原子を含有している。

アルキル基 R 及び R' 並びにアルコキシ基 R 及び R' のアルキル部分は好適には1~4個の、特に1又は2個の炭素原子を含有している。アルケニル基 R' 及び R''' は好適には2~4個の炭素原子を含有している。

ヘロゲン原子 R'' 及び R''' は好適には弗素、塩素及び溴素、特に塩素、である。

アルキル基 R 並びにアルキルオキシ基 R'' のアルキル成分は好適には1~6個の、特に1~3

個の、炭素原子を含有している。アルケニル及びアルキル基 R' 並びにアルケニルオキシ及びアルキルオキシ基 R''' のアルケニル及びアルキニル成分は好適には2~6個の特に2又は3個の炭素原子を含有している。アルコキシアルキルオキシ及びアルコキシアルキル基 R'' はそれぞれ好適には3~6個の、特に2又は3個の炭素原子を含有している。シクロアルキル基 R''' は一般に3~7個の好適には3~6個の、炭素原子を含有している。シクロアルキル基 R''' は1個もしくはそれ以上、好適には1個の、好さしくは炭素数1~4の(特に1又は2の)アルキル基により置換されていてもよい。

シクロアルキルアルキル基 R''' は一般にシクロアルキル部分に3~7個の、好適には3又は6個

の、炭素原子及びアルキル部分に好適には1~3

個の中に1又は2個の炭素原子を含んでいる。

ベンジルシタロアルキルアルキル基R¹は各ア

ルキル部分に好適には1~4個の、特に1又は2

個の、炭素原子を含んでいる。

シクロアルキルアルキル、ベンジルシクロアルキ

ルアルキル及びテトラヒドロフルル、テトラヒド

ロフルフルル及びテトラヒドロビラール基R¹は

1個もしくはそれ以上の、好適には炭素数1~4

の(特に1又は2の)アルキル基により置換され

ていてもよい。

1個もしくはそれ以上の、好適には1個のヘキ

サン原子(特に水銀、亜鉛もしくは鉄)、又は

1個もしくはそれ以上の、好適には1個の、ニト

リル、水銀もしくはオキソ基、により置換されて、

又はアルコキシ部分は好適には1~4個の、特

に1又は2個の炭素原子を含んでいる。

アフェニルアルケニル基R¹は一般にアルケニル

部分に2~4個の炭素原子を含んでいる。

該¹が芳香族基(フェニル又はナフチル)を含

む場合又は該¹が芳香族部分(フェニル又は

ナフチル)を含んでいる場合、芳香族基は1個

もしくはそれ以上の、好適には1又は2個の替

換基を有することができる。置換基には、炭素数

1~4の(好適には1又は2の)アルキル基;炭

素数3~4のアルケニル基;炭素数1~4の(好

適には1又は2の)アルコキシ基;炭素数3~4

の(好適には2又は3の)テルオキシ基;炭素

数1~4の(好適には1又は2の)アルキルス

イアルキル基R¹は好適には1~4個のもの又は

又は2個の炭素原子を含んでいる。

カルバロキシアルキル基R¹は一般にアルキ

ル部分に1~4個の、好適には1又は2個の炭素

原子を含んでいる。

シクロアルキルアルコキシ基R¹は一般にシク

ロアルキル部分に3~7個の好適には5又は6個

の、炭素原子を含めてアルキルもしくはアルコキ

シ部分に1~4個の好適には1又は2個の、炭素

原子を含んでいる。

シクロアルコキシ基R¹は一般に3~7個の好

適には3又は6個の炭素原子を含んでいる。

R¹として用いられているテトラヒドロフルル

アルコキシ基、フェニルアルコキシ基、フェノキ

シアルコキシ基又はフェニルアルキル基のアルキ

ルアミノ基;及び炭素数1~4の(好適には1

又は2の)アルキルスルホニルアミノ基が含まれ

る。

酸素-芳香族基系R¹は一般に1~3個の好適

には1又は2個の、ペテロ原子(例えば酸素、硫

素及び窒素)を含んでできる酸素-芳香族基中に1

又は2個の酸素を含んでおり、そして酸素にペ

ンゼン環が結合している。酸素-芳香族基

系は1個もしくはそれ以上の、(好適には1又は

2個の)炭素数1~4の(好適には1又は2の)

アルキル基により置換されていてもよい。例とし

てフルル、テエニル、イソキサソリル、ピリミ

リル、イミダゾリル、ピラゾリル、イントリル、

チアナフチル、キノリル、フェノチアソニル、チ

アザチアソニル等が酸素-芳香族基である。

フリルアルキル、チエニルアルキル、インドリルアルキル、フリルアルキルオキシ及びチエニルアルキルオキシ基¹は一般にアルキル又はアルコキシ部分中に1～4個の好適には1又は2個の、炭素原子を有している。これらの基の炭素芳香族成分は3個もしくはそれ以上の好適には1又は2個の、アルキル基(一般に炭素数1～4、好適には1又は2)により置換されていてよい。

アルキル基²は好適には1～6個の時に1又は2個の、炭素原子を有しておらずしてアルケニル基³は好適には2～6個の炭素原子を有している。

アラルキル基⁴は一般にアリール部分に6又は10個の炭素原子を有してアルキル部分に1～4個の、好適には1又は2個の、炭素原子を有す

している。 特開昭48-361696

シクロアルキル基⁵及びシクロアルキルアルキル基⁶のシクロアルキル部分は一般に3～7個の、好適には5又は6個の、環員を有している。シクロアルキル基⁷はアルキル部分に1～4個の好適には1又は2個の、炭素原子を有している。

特に好適な化合物は、

R¹が炭素数1又は2のアルキル基、又はアリルもしくはメチリルもしくはクロチル基であり、R²が炭素数1～3のアルキル基、又はアリル、-C₆H₄基もしくは-SO₂基であり、

[ここでR³は水素原子又は炭素数が3までの直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基(これは併せてCF₃又はメトキシ基により置

換されていてよい)、又は炭素数3～5のシタヌアルキル、5-メチルイソキサン-1-アルキル基もしくはフェニル基、R⁴アルキル基、又は炭素数が4までのアルキルオキシもしくはアルキルオキシ基(これは任意にメトキシ基により置換されていてよい)であり、R⁵は炭素数1又は2のアルキル基である]

R⁶は水素原子であり、

R⁷は水素又は塩素原子であり、そしてR⁸及びR⁹は同種とも水素原子である。ものである。

本発明における塩の中では、選択的に許容できるものが好適である。

新規化合物の好適な塩は塩酸塩、ナフタレンジスルホン酸塩、ペモエイト(pemectate)、アビエチン酸塩、フマール酸塩、ラウリン酸塩、ステアリル酸塩、アラニン塩、アラニン-β-アルギニン塩

一般式(I)の新規な選塩2-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-チアシクロアルカン及びそれらの塩はいずれかの選塩を方法で相互転化可能であり、該転化方法は当業界で公知である。

本発明における新規な活性化合物の例として特に下記のものが挙げられる：

2-(4-カルベトキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン及びその塩酸塩；

2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン；

2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン及びその塩酸塩及びナフタレンスルホン酸塩；

2-(4-(2-フリルカルボニル)-アミノ

2-(4-テトラフルオロエキノ)-R-アソ

吸収波長:

2-(4-テトラフルオロエキノ)-R-アソ

R-メチル-アソリシン及びその誘導体:

2-(4-カルペトキシ-3-フロム-アソノ-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収:

2-(4-アソノ-3-フロム-アソノ-フェニル-
イノ)-R-メチル-アソリシン:2-(4-オルベント(ノフェニルイノ))-
R-メチル-アソリシン:2-(4-カルペトキシフェニルイノ)-R-
-メチル-6H-3,6-ジヒドロ-1,3-ア-
ソリシン:

2-(4-テトラフルオロエキノ)-R-アソ

吸収:

2-(4-(3-メチルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収:

2-(4-(2-メチルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収: 及び

2-(4-(2,3-ジカルペンソイルアソ-
ノ)-フェニルイノ)-R-メチル-アソリ-
シン誘導体。

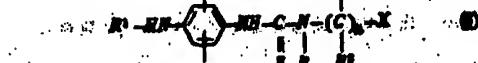
一般式①の新規化合物は、つきの方法によつて

製造される。

この方法によつて得られる化合物は、次に示す

A) 一般式

するようにして得られる。



ル-アソリシン:

2-(4-イソアフルオロエキノ)-R-アソ

R-メチル-アソリシン:

2-(4-(4-クロルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収:

2-(4-(3-クロルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収:

2-(4-(2-クロルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

吸収:

2-(4-(4-メチルベンゾイルアソノ)-
フェニルイノ)-R-メチル-アソリシン誘

【R1, R, R1, R2, R3, R4, R5】

及び、上記で定義した如くであり、そし

て

又はヘロゲン(好適には塩素もしくは臭素

), スルホニルカチオン(例えばトリルカチ-
オン、カルボニルカチオン、カルボニルカ-
チオン又は水酸基である)。

07エカルテオ酸を水酸基性誘導(例えば水、

メタノールもしくはエタノール)の存在下で又は
水酸基性誘導(例えば水、メタノール)の存
在下で、任意に高められた温度にかけて液
化する。

この方法によつて得られる化合物は、

B) 一般式

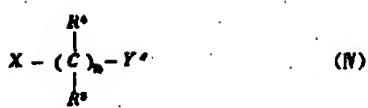
この方法によつて得られる化合物は、

R-CH2-CH2-C(=O)-NH-(C6H4)-X

のエカルテオ酸を任意の量存在下で

一般式

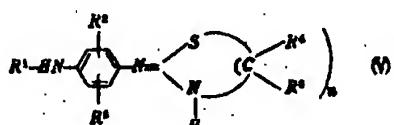
するようにして得られる。



〔上記式(IV)及び(V)において、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 X 及び Y' は上記で定義されている如くであり、そして Y' は X 又は NR_2 基である〕

の化合物との反応により置換する。

C) 一般式



02-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-ナフチクロアルカンを、一般式

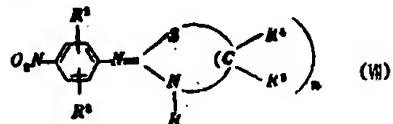
$B - R$

(VI)

特開昭48-36169(5)
〔上記式(V)及び(VI)において、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び n は上記定義されている如くであり、そして B は H 又は B として除去される基〔例えばヘロゲン(好適には塩素もしくは臭素)、アリールスルホニルオキシ(好適にはベンゼンスルホニルオキシもしくはトルソニルオキシ)、又はアルキルスルホニルオキシ(好適にはメタンスルホニルオキシ)〕である。〕

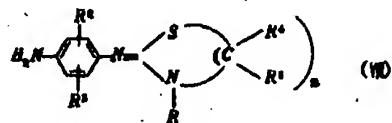
のアルキル化剤と反応させる。

D) 一般式



02-(4-ニトロフェニルイミノ)-3-アザ

-1-ナフチクロアルカンを還元して一般式



のアミンを製造し、そして R^1 が水素ではない本発明における化合物が要求されるとき R はこのアミンを次に

(a) [R^1 が塩素もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキニル基(これは任意に1個もしくはそれ以上のヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい)である本発明における化合物が要求されるときには]。

一般式

$B - R^{10}$

(IX)

〔式中、 B は上記(C)中で定義された如く

であり、そして R^{10} は塩素もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキニル基(これは任意に1個もしくはそれ以上のヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい)である〕

のアルキル化剤と反応させるか、又は

(b) [R^1 がアルキル基である本発明における化合物が要求されるときには]

一般式



〔式中、 R^5 は水素原子又はアルキル基であり、そして R^6 はアルキル基である〕

のオキソ化合物と反応させてシップ塩基を製造し、そして次にこれを希塩酸に酸化する(こ)

セシップ塩基は過量する必要はないが、又は

(cc) [R¹ が-CUR² 又は-SU¹R² 基で、る本格
明における化合物が要求されるときには]、任
に溶媒の存在下でそして任に試験剤の存在下
で、一般式



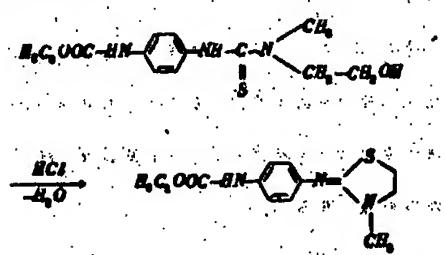
[式中、Y は水素に使つて -COR³ 又は -SOR³
であり、そして Y は R⁴ として表示され
得る基である]、

のアシル化剤又はスルボニル化剤と反応させるか、
又は

(dd) [R¹ が直鎖又は枝分かれしたアルキル、
アルケニル又はアルキニル基 (これは任に) と
もしくはそれ以上のハロゲン代りアルコキシ基
より置換されていてもよい] である本発明における

及び Y は上記で定義された如くである]
の化合物を加水分解する。

実験 (4) において、N-(4-カルペトキシ
アミノフェニル)-N'-メチル-N'-(β -
ヒドロキシエチル)-チオ尿素を出発物質として
使用する場合、反応過程は下記式により表わす
ことができる:



実験 (B) において、N-(4-カルペトキシ
アミノフェニル)-N'-メチル-チオ尿素及び

特開昭48-36169(8)
る化合物が要求されるときには]、脂肪族又は芳

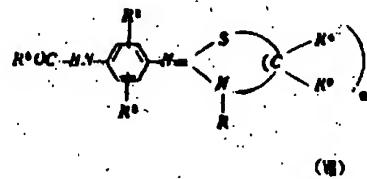
族アルデヒドと反応させてシップ塩基を与える。
それを次に、一般式



[式中、Y 及び R¹⁰ は上記 (cc) 中に定義され
ている如くである]

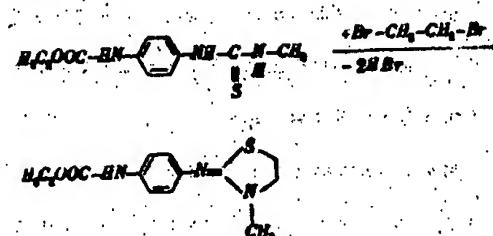
の化合物で脂肪族化し、そしてその後アルデヒド
基を加水分解的に分離して要求される本発明にか
ける化合物を与える。

B) 一般式

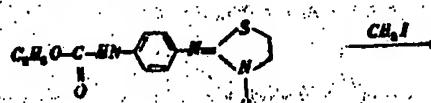


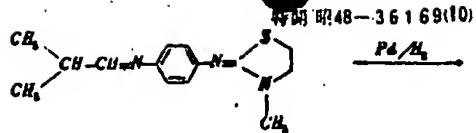
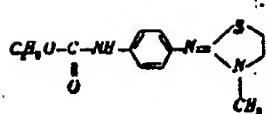
[式中、R、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰ は

1, 2-ジプロムエタンを出発物質として使用す
る場合、反応過程は下記式により表わすことがで
きる:

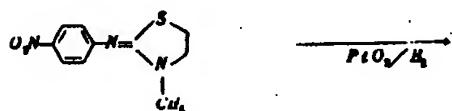


実験 (C) において、N-(4-カルペトキシ
アミノフェニルイミノ)-チアツリジン及び
化メチルを出発物質として使用する場合、反応過
程は下記式により表わすことができる:

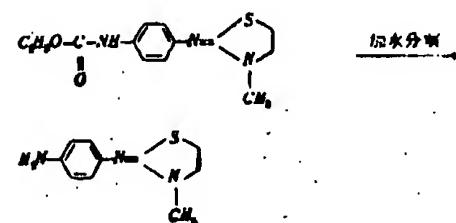
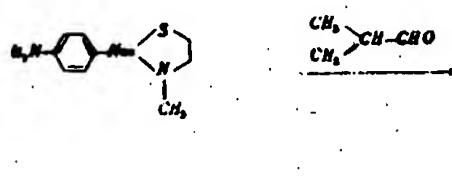




変法 (D) において、2-(4-オキソ-4-フェニルイソブチル)-N-メチルチアゾリジンを出発物質として使用し、そして H_2/PtO_2 で還元して生産物を次にイソブチルアルデヒドと反応させ、そしてその後 H_2/Pt で還元する場合、反応過程は下記式により表わすことができる：



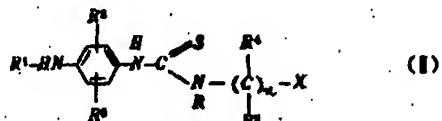
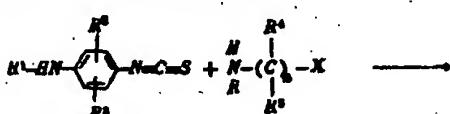
変法 (E) において、2-(4-カルバメトキシアミノフェニルイソブチル)-N-メチルチアゾリジンを出発物質として使用し、その後 H_2/Pt で還元する場合、反応過程は下記式により表わすことができる：



上記の変法 (A), (B), (C), (D) 及び (E) において使用される出発化合物は、一般に式 (I) ~ (III) により定義されている。

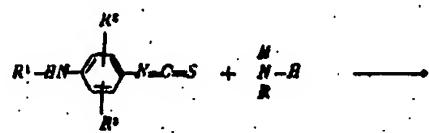
変法 (A) ~ (D) の出発物質として使用される化合物のあるものは公知であり、その他のものを製造できる方法も公知である。

変法 (A) において使用されるチオ尿素は、フェニルイソシアネートを 10 ~ 50% の割合で還元において、好適には 20 ~ 30% において、この反応に対して不活性である物質（例えばエーテル、特にテトラヒドロフラン）中で、アミノ-アルコール又はアミノアルキルクロラムドと注意深く一緒にすることにより製造される：



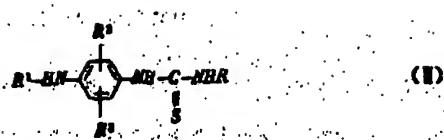
一般式 (I) において X が水酸基を表わす場合には、対応するハロゲン置換された化合物が一般式 (I) の化合物から不活性溶媒中のハロゲン化チオ尿素（好適には塩化チオ尿素）との反応により製造される。

変法 (B) において必要なチオ尿素は変法 (A) の出発物質の製造用に記されているのと同様にして適当なフェニルイソシアネート及び第一級アミンから製造できる：

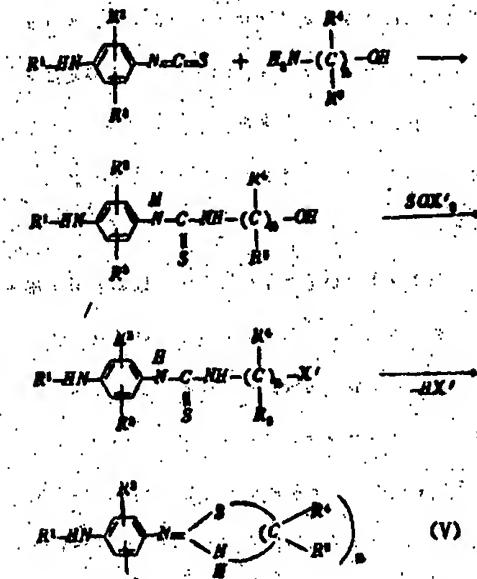


により行はれる。これらの反応試薬は下記式に

より表わすことができる:



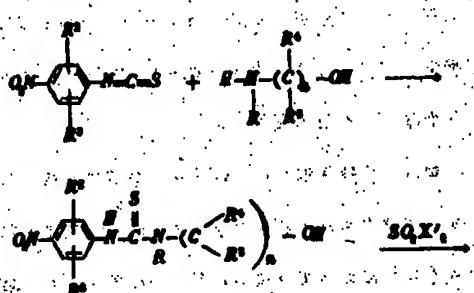
実験 (C) 用に必須な出発物質は過酸化フェニルイソシアネートを (A) 及び (B) のところで記されている反応条件下で第一級アミノ-アルコールと反応させ、そしてその後不活性有機溶媒中で高められた温度において (例えば昇温している塩化メチレン中で) ヘロダイン化オキニル (好適には塩化オキニル) と反応させることにより最もよく得られる。これは水酸基付生成物を対応する塩素含有化合物に転化させる。式 (V) の対応する 3-フェニルイミノ-3-アザ-1-アラビクロアルカンを導くための環化反応は次に示すされた塩素含有化合物を沸騰水中で加熱すること



【式中、R¹ ~ R¹¹ 及び X' は上記で定義される】

大切である。そして X' は Cl, Br 又は I (好適には Cl) を表わす)。

実験 (D) で使用されるペトロ化合物は反応実験 (C) の出発物質の製造用に記されている用に過酸化フェニルイソシアネート及びナミノ-アルコールから得られる。これを好適にはその後ヘロダイン化オキニル (好適には塩化オキニル) と反応させ、分離し (好適には沸騰水中で) 環化させる。



【式中、R, R¹ ~ R¹¹, X 及び X' は上記

で定義されている如くである。】

チオ尿素を環化する実験 (A) 及び (B) は各試薬で又は生成物中で実施され、そして適當な試薬の選択は特定の反応成分の安定性及び反応性により決定される。試薬の使用は最もしいが絶対的に必要なものではない。

使用できる有機試薬は実験 (A) 及び (B) に共に不活性である全ての有機試薬、例えば炭化水素

(例えばベンゼン及びリグロイン)、エーテル(

例えばジエチルエーテル及びジオキサン)、ヘロダム化炭化水素(例えば塩化メチレン)、エステル(例えば酢酸エチル)、アルコール(例えばメタノール、エタノール及びプロパンノール)、及び水、である。上記の希酸削削剤の混合物も使用できる。

方法(4)及び(5)に従うテオ尿素の環化用の好適な媒は水性もしくは無水の強酸、例えば塩酸、臭化水素酸、硝酸、ボリ硫酸、硫酸、ベンゼンスルホン酸及びナタヌルホン酸である。

環化において反応温度は広い範囲にわたって变化できる。一般に反応は0~150°Cの間にかけて、好適には希酸削削剤の沸点において、実施される。冷却しながら反応を開始することがしばしば有利

ル)、エタノール性塩酸、又はエーテル(例えばテトラヒドロフラン)の存在下で、0~100°C(好適には20~80°C)の温度において、任意に圧力下で(例えば1~100、好適には60~80、ゲージ圧において)実施される。

還元は重鉛/塩酸及び塩化錫(II)を用いて、好適には水溶液中でも実施される。

還元はさらに還元ナトリウムを用いて、例えばアルコール(例えばメタノール及びエタノール)中で又はエーテル(例えばテトラヒドロフラン)中で、20~100°Cの温度において(好適には削削剤の沸点において)実施できる。

還元剤としてさらに錫金属水素化物(例えばナトリウムボロネイト(sodium boronate))

である。

方法(C)においては1モルの化合物(X)当たり1モルのアルキル化剤を普通最初に加える。一般に反応は0~120°Cの間にかけて、好適には20~80°Cにおいて、そして好適には不活性有機希釈剤、例えばエーテル(例えばジエチルエーテルもしくはテトラヒドロフラン)又はアルキルエトリル(例えばアセトニトリル)の存在下で、実施される。

方法(D)におけるニトロ化合物及び/又はそれらの塩の還元に対しては公知の方法が用いている。

この還元は有利には標的的に(例えば貴金属酸の存在下で水素を用いて)、任意に希釈剤(例えばアルコール(例えばメタノール及びエタノ

ル)、エタノール性塩酸、又はエーテル(例

テラヒドロフラン)の存在下で、0~100°C(好適には20~80°C)の温度で実施される。

方法(Da)においては1モルの化合物X当たり1~2モルのアルキル化剤が一般に使用される。反応は0~120°Cの間にかけて、好適には20~80°Cにおいて、そして好適には不活性有機希釈剤の存在下で生じる。希釈剤の例としてエーテル(例えばジエチルエーテル及びテトラヒドロフラン)及びアルキルエトリル(例えばアセトニトリル)が挙げられる。時には複結合剤(例えばアルカリ金属炭酸塩又はアルカリ土類金属炭酸塩、好適には炭酸ナトリウム又は炭酸カリウム)を加えることも望ましい。

方法(Db)において反応物は好適にはほどそく量で使用される。この反応(これは一般に約20

他の例はアルコール(例えばメタノール及びエタノール)、エーテル(例えばテトラヒドロフラン)及び芳香族炭化水素(例えばベンゼン及びトルエン)である。この方法で得られたシップ塗基は任意に分離後に、例えば酸熱的に(例えば硫酸として硫酸銅を用いて)水素化される。硫酸銅元は好適には湿潤(約80°C)において、そして任意に圧力下(1~80ゲージ圧、好ましくは80ゲージ圧)で、実施され、そして結果として例えばアルコール(例えばメタノール及びエタノール)、芳香族炭化水素(例えばベンゼン及びトルエン)又はエーテル(例えばテトラヒドロフラン)を使用することができる。

シップ塗基の還元も錯体金属水素化物、例えばナトリウムガリネイト、を用いて実施することも

でき、この場合など化学量論的量の金属水素化物を必要とする。この際反応は20~80°Cの範囲において実施される。

塗装(D46)においては反応物は好適にはセル量で一緒にされる。

反応温度は一般に0~120°C、好適には20~80°Cである。

使用できる溶媒にはこの反応に対して不活性である全ての有機溶媒が含まれる。該溶媒の例として、低級脂肪族アルコール(例えばメタノール及びエタノール)、芳香族炭化水素(例えばベンゼン及びトルエン)、石油エーテル、塩酸化炭化水素(例えばクロロホルム及び塩化メタレン)及びテトラメチルスルホンが挙げられる。

アルキル化鋼又はスルボール化鋼アーマーとして使

KT化のものを挙げることができる: 低級アルキルビニル酸塩オステル(ここでアルキル基は1~4個の炭素原子を有している)、低級クロル酸塩アルキルエステル(ここでアルキル基は好適には1~4個の炭素原子を有している)、低級アルキルカルボン酸クロライド及びソロマイド(ここでアルキル基は好適には1~4個の炭素原子を有している)、タクシメルホン酸クロマイド、塩化ベンゾイル及び無水酢酸。

塗装(D46)において一般式Xの化合物はいずれかの金属するアルケビド(例えばナモトアルアヒド又はメシメルアヒド)と反応させシップ塗基を与える。このようないくつかに対する塗装の方法を使用できる。反応物は好適にはセル量で使用される。反応温度は一般に0~80°C、好適には

20~40°Cである。使用できる溶媒はこの反応に対して不活性である全ての有機溶媒、例えばアルコール(例えばメタノール及びエタノール)、芳香族炭化水素(例えばベンゼン及びトルエン)、又はエーテル(例えばテトラヒドロフラン)である。

シップ塗基を、任意に分離した後、好適には20~40°Cで、特に60~80°C、温度において、一般式Xのアルキル化鋼で酸化反応する。この反応では公知の方法を使用できる。使用できる溶媒にはこの反応において不活性である全ての有機溶媒(例えばベンゼン、トルエン及びテトラヒドロフラン)が含まれる。その後の加水分解は好適には塩酸化されたシップ塗基を分離せずに、好適には50~100°C(特に60~90°C)の

温度においてそして好適には水性アルコール(特にエタノール)中で実施される。

方法(2)において加水分解は好適には強酸(例えば塩酸又は硫酸)の存在下で実施される。溶媒として水又は水と水溶性アルコール(例えばメタノールもしくはエタノール)との混合物が使用できる。加水分解は好適には沸騰の沸点で起きる。

本発明における化合物は線虫に対する非常に良好な活性を示す。本発明における化合物において高い吸血活性が、アミノ、アシルアミノもしくはスルホニルアミノ基をフェニルイミノ-3-アザ-1-ナシクロアルカンのフェニル環へ加えた結果としてあらわれるということは非常に実験的でありそして予期できなかつた。該化合物は問題の他の公知の駆虫剤(例えばペフェニウムヒドロ

4. 線虫(例えば *Strongyloides ratti*)
5. 蟲虫(例えば *Tomocera canis*, *Tomocera leonina*, *Accarii suum*)
6. 螺虫(例えば *Aegiculuris tetraptera*)
7. ヘテラキス(例えば *Heterakis spumosa*)
8. 線状虫(例えば *Litomosoides carini*, *Dipetalonema vitei*)

作用は動物実験において寄生虫に非常に感染されている試験動物に経口的及び非経口的に投与した後に試験された。試験動物は用いられた服用量に非常によく耐性があつた。

上記の如く、本発明における化合物は人間及び獣医学的疾患として使用できる。

活性成分として本発明における化合物を固体もしくは液化された液体の形態と混合して、又は

開昭48-36169(14)

キシナフトエート、フェニレン-1,4-ジイソシアネート(ニペイートスカネート)、テアベンダゾール及びビペラジン)より実験的に良好な効果の作用を有している。

特に、上記方法に従つて製造される化合物は例えば下記の線虫に対する薬理的に良好なそして広い作用を有している:

1. 鈎虫(例えば *Ancylostoma caninum*, *Uncinia stercorophila*)
2. 蛲虫(例えば *Haemonchus contortus*, *Trichostrongylus colubriformis*, *Nipponstrongylus maris*, *Nematostrongylus dubius*)
3. ストロンギリス科(例えば *Oesophagostomum columbianum*)

表面活性の存在した場合を除いて200より小さい(好適には350より小さい)分子量の液体以外の液体希釈剤と混合して含有させることにより医薬組成物が得られる。

活性成分として本発明における化合物を液状のもしくは液状の水溶液に含有させることにより医薬組成物が得られる。

また、本発明における化合物を単独で又は希釈剤と混合して含有させることにより服用単位形の医薬が得られる。

また、本発明における化合物を単独で、又は希釈剤と混合して含有させることにより錠剤(ロゼンジ及び顆粒を含む)、糖衣丸、カプセル、丸薬、アンプル又は液状が得られる。

この明細書中で使用されている「医薬」とは医

製剤と用に適してい。物理的に分離した密着部分

意味する。この明細書中で使用されている「服用単位形の薬物」とは1日量又は1日量の倍量(4倍まで)もしくは分数量(半まで)の本発明に記載する化合物をそれぞれ含有している医薬投与用に適している物理的に分離した密着部分を意味する。薬物が1日の服用量を含有しているか又は例えば1日の服用量の半、もしくは半を含有しているかは、薬物がそれぞれ1日に1回又は例えば2回、3回もしくは4回投与されるかによる。

医薬組成物は例えば軟膏、ゲル、散布剤、クリーム、噴霧剤(エーロゾルを含む)、ローション、懸濁剤、活性化合物の水もしくは非水溶媒中の懸液及び乳化液、ソロップ、糊剤又は粉末の形状をとることができる。

テアリン酸カルシウム及びマグネシウム及び固体メリエチレングリコール。

医薬組成物から形成される製剤、錠丸、カプセル及び丸薬は物理的な被膜、包被及び保護被膜(これは乳化剤を含有していてもよい)を有することができる。それらはそれらが活性成分のみを好適には脂質の既定部分に、又ははある時間にわたって放出するよう準備にすることができる。被膜、包被及び保護被膜は例えば高分子物質又はワックスからなつていることができる。

被膜はまた上記の医薬剤の1種もしくは数種と一緒になつて微小カプセル化された形に成形することができる。

当業に成形されて服用される医薬組成物中で使

用される医薬剤には下記のものが含まれる:

(1) 充填剤及び併用剤、例えばデンブン、砂糖、マートル及びけい砂; (2) 締合剤、例えばカルボキシメチルセルロース及び他のセルロース誘導体、アルギン酸塩、ゼラチン及びボリビニルビロイド; (3) 水分付与剤、例えばグリセロール; (4) 増強剤、例えばアガール・ナガール、炭酸カルシウム及び炭酸水素ナトリウム; (5) 溶解延緩剤、例えばペラフィン; (6) 吸収促進剤、例えば結晶性アンモニウム化合物; (7) 表面活性剤、例えばセチルアルコール、グリセロールモノステアレート; (8) 敷着被膜、例えばカオリン及びペントナイト; (9) 防滑剤、例えば滑石、ス

チの粉剤、例えばポリエチレングリコール及び脂肪(例えばコロア油及び高級エステル(例えばC₁₀-脂肪酸とのC₆-アルコール))又はこれらとの混合物であることができる。

軟膏、散布剤、クリーム及びゲルである医薬組成物は例えば普通の医薬剤、例えば活性成分及び被膜、ワックス、ペラフィン、デンブン、トウカイント、セルロース誘導体、ポリエチレングリコール、シリコーン、ペントナイト、ケイ酸、滑石及び吸化薬又はこれらの物質の混合物を含有することができる。

粉末及び散剤である医薬組成物は例えば普通の医薬剤、例えば乳糖、滑石、ケイ酸、水酸化アルミニウム、ケイ酸カルシウム及びアラミド粉又はこれらの物質の混合物を含有することができる。

ある。エーロソル吸着剤は例えば普通の粉粒素、例えばタロルフルオロ炭化水素を含有できる。

粉粒及び乳化液である医薬組成物は例えば普通の希釈剤（もちろん上記の如く表面活性剤の存在した場合を除いて200より小さい分子量を有する粉粒を除く）、例えば着色剤、潤滑剤及び乳化剤を含有することができ、このような希釈剤の例は水、エチルアルコール、イソプロピルアルコール、炭酸エチル、酢酸エチル、ベンジルアルコール、ベンジルベンゾエート、プロピレンタリコール、1,3-ブチレンタリコール、ジメチルホルムアミド、油（例えば粉碎された熟花生油）、グリセロール、テトラヒドロフルフラルアルコール、ポリエチレンタリコール及びソルビトールの脂肪酸エステル又はこれらの混合物である。

医薬組成物は好適には金属成物の約0.1～99.5重量%、より好適には約0.5～99.5重量%の活性成分を含有している。

医薬組成物及び薬物は本発明にかかる化合物の他に、他の医薬的に活性な化合物も含有できる。それらはまた複数個の本発明の化合物を含有することもできる。

薬物中の希釈剤は医薬組成物に対して上記されているものといずれかである。そのような薬物は第一、試剤としての200より小さい分子の粉粒を含むことができる。

薬物を構成している分離した密着部分（服用半位形又はそうでないもの）は例えば下記のいずれかで、これで、粉粒（ロゼンジ及び顆粒）

非経口的投与するためには溶液及び乳化液は無害性であるべきであり、そして場合ならば血栓性であるべきである。

難溶度である医薬組成物は普通の希釈剤。例えば液体希釈剤、例えば水、エチルアルコール、ブロビレンタリコール、表面活性剤（例えばエトキシル化イソステアリルアルコール、ポリオキシエチレンソルベート及びソルビタンエステル）、難燃性セルロース、メタ水酸化アルミニウム、ベントナイト、アガール、アガール及びトラガカン又はそれらの混合物を含有できる。

全ての医薬組成物はまた着色剤及び防腐剤並びに香料及び着色添加物（例えばペパーミント油及びユーカリ油及び苦味剤（例えばサンカリン）を含有できる。

シブル、これらの形のものは活性成分の遮断放出用に製造されることができる。例えば、カプセルの如きあるものは薬物の一部を物理的に分離及び密着状態にさせる保護包装物を含有している。

薬物を人間に投与するための好適な一日の服用量は50～9000mgの活性成分である。

上記の医薬組成物及び薬物の製造は医薬界で公知である方法により、例えば活性成分を希釈剤と混合して医薬組成物（例えば粉粒）を成形しそして次に該組成物を薬物（例えば錠剤）に成形することにより、実施される。

さらに人間及び非人間動物に、本発明にかかる化合物を单独で又は、試剤と混合して又は薬物の形で投与することによつて、人間及び非人間動物にかかる活性を示すことができる。

より特に細虫による感染を抑制する(子宮、細胞及び
垂体を含む)ととができる。

これらの活性化合物は経口的に、非経口的に(
例えば筋肉内に、腹膜内に、又は膀胱内に)、直
接に又は局部的に投与されるだらうと考えられる。

一般に効果のある結果を得るためにには1日あたり
1mg~100mg/1kgの体重の量を投与すること
が有利であると証明されている。それにもかゝわ

らず時にはこれらの服用薬から離れることも必
要であり、そして特に効果される人間又は動物の
個体の性質及び体重、経路に対するこの薬の効
果の反応、活性成分が投与される化合物の量及
び投与が実施される部位、及び病気の進行時点又
はそれを投与する間隔によりそのようにすること
が必要である。従つてある場合には上記の最小服

用薬量より少量を使用すれば充分で、一方他
の場合には、用する結果、得るためにには上記の上
限を越えなければならない。より多量を投与する
場合にはこれらを1日の間に数回の個々の投与に
分けることが推奨される。

本発明における活性化合物の駆虫作用を下記の
使用例により詳しく説明する。

使 用 例 4

飼虫試験 / 大

Anelastoma dentatum 及び *Uncinaria stercoraria* で実験的に感染されている大を寄生
虫の明白初期の最後に処理した。

ある量の活性化合物をゼラチンカプセル中の純
粋な活性化合物として経口的に投与した。

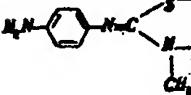
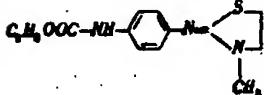
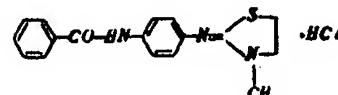
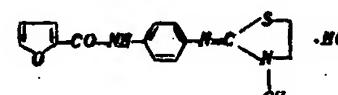
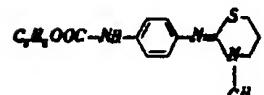
作用の程度は既經皮に駆虫された虫の数及び解

剖後に試験動物中に残っている虫の数を数えそし
て駆虫された虫のペーセンテージを計算するとと
により決定された。

下表は活性化合物、寄生虫の種及び試験動物の
虫感染を90%より多くまで減少させる最少服用
量(%)(>90%)を商業的に入手可能である物
合物と比較して記したものである。

服用量は1kgの体重当たりの活性物質のmgで表わ
されている。

表 1 (使用例 4)

本発明における活性化合物	寄生虫	有効最少服用量 (Rod. > 90%) mg/kg
	Anoglyostoma caninum	5
	Anoglyostoma caninum	2.5
	Uncinaria stenocephala	1.0
	Anoglyostoma caninum	1.0
	Anoglyostoma caninum	1.0
	Anoglyostoma caninum	1.0
比較用の公知の化合物	寄生虫	有効最少服用量 (Rod. > 90%) mg/kg
ピトスカネット	Anoglyostoma caninum	6、毎日 1-2 日間*
	Uncinaria stenocephala	2.5
ペフェニクム	Anoglyostoma caninum	2 x 5.0 **
	Uncinaria stenocephala	2 x 5.0 **
チアベンダゾール	Anoglyostoma caninum	部分的作用のみ
	Uncinaria stenocephala	部分的作用のみ
ビペラジン	Anoglyostoma caninum	部分的作用のみ

a) レムラー (Lämmer)、O.及びE.ソーザ (Soza) (1969)。

Z. Trop. Parasitenk. 20, 340

b) ラウエス (Reiss)、D. A. (1961)。

Acta Rer. 72, 390

計算することにより決定した。

下表は活性化合物及び虫による試験動物の感染

を9.0より多くまで減少させる最小服用量を市

場の調合物と比較して記したものである。

表 2 (使用例 B)

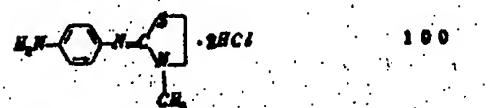
参考例 B.

Strongyloides dubius/二十日ねずみ

Strongyloides dubius で実験的に感染された二十日ねずみを寄生虫の明白前段の通りに感染した。ある量の活性化合物を水性懸濁液として経口的に投与した。

調合物の作用の強度は解剖後試験動物中に残存している虫を未感染の对照用動物と比較して数を数え、そしてこれからパーセンテージの作用を

本発明における活性化合物 最少有効服用量 (kg. > 50kg) mg./kg



活性化合物 (比較用の公知化合物)	最少有効服用量 (kg. > 50kg) mg./kg
チアベンダゾール	5.00
ペフニクム	5.00
ビトスカネット	2.50
ビベラジン	不活性

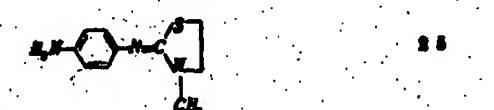
てあるねずみを寄生虫の明白前段の感染に感染した。ある量の活性化合物を水性懸濁液として経口的に投与した。

調合物の作用の強度は解剖後試験動物中に残存している虫を未感染の对照用動物と比較して数を数え、そしてその後パーセンテージ作用を計算することにより決定された。

下表は活性化合物及び試験動物の虫による感染を9.0より多くまで減少させる最小服用量を市場の調合物と比較して記載したものである。

表 3 (使用例 C)

本発明における活性化合物 最少有効服用量 (kg. > 50kg) mg./kg

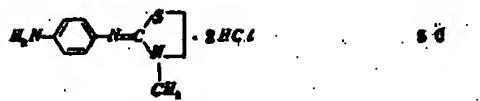


使用例 C.

Strongyloides ratti/ねズみ

Strongyloides ratti で実験的に感染され

使用例 D.



8.0



1.0

比較用の公知の活性化合物

チアベンダゾール	2.6
ペフエニウム	1,000
ビトスカネート	250
ビペラジン	不活性

・ 離虫試験 / 大、ねずみ

ある量の活性化合物をセラチンカプセル中の純
粋な活性化合物として経口的に *Tenebrio molitor*
及び *Tenebrio confusus* で自然に感染されてい
る大に投与した。

作用の強度は処理後に駆除された虫及び解剖後
に試験動物中に残っている虫の数を数えそして駆
除された虫のパーセンテージを計算することによ
り決定された。

Aseceris ornata で実験的に感染されたねずみ
を感染後 2~4 日後に処理した。ある量の活性化
合物を水性懸濁液として経口的に投与した。

化合物の作用の強度は解剖後に試験物中に残つ
ている虫を未処理の対照用動物と比較して数を数

えそしてそれからパーセンテージ作用を計算する
ことにより決定された。

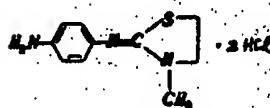
下表は活性化合物及び虫による試験動物の感染
を 90% より多く減少させる最小服用量を市販の
薬物と比較して記したものである。

表 4 (使用例 D)

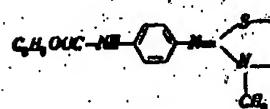
本発明にかかる活性化合物

寄 生 虫

最少有効服用量 (Rid. > 90%) mg/kg

*Acaricidae* (larvae)

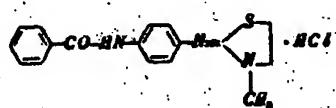
1.00

*Acaricidae* (larvae)

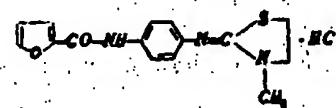
2.50

Trombicula (larva)

2.5

*Acaricidae* (larvae)

2.5

*Acaricidae* (larvae)

2.5

比較用の公知の化合物

寄 生 虫

最少有効服用量 (Rid. > 90%) mg/kg

*Acaricidae* (larvae)

5.00

Trombicula (larva)5.00^(a)*Acaricidae* (larvae)

不活性

Trombicula (larva)1.2 × 10⁴*Acaricidae* (larvae)

不活性

Trombicula (larva)2.00^(a)*Trombicula* (larva)2.00^(a)* フルツ (Platz), W. (1962) *Die Fleischfresser* 1, 176** レムラ-, O. & U. B. U. (1969) *Z. Trop. Parasitol.* 20, 366*** フツツ- (Katz), E. (1965) *Wien. Tierärztl. Monat.* 52, 242

使用例 B.

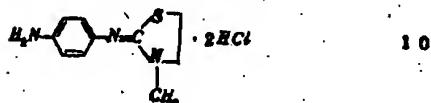
Heterakis spumosa/二十日ねずみ

Heterakis spumosaで実験的に感染された二十日ねずみを寄生虫の明白前期の最後に処置した。ある量の活性化合物を経口的に水性懸液液として投与した。

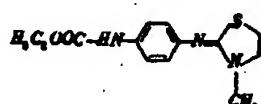
混合物の作用の強度は解剖後に試験動物中に残っている虫を発育度の対照用動物と比較して数を数えそしてそれからパーセンテージ作用を計算することにより決定された。

表 8 (使用例 B)

本発明における活性化合物	最少有効服用量 ($ED_{50} > 200$) mg/kg
--------------	--------------------------------------

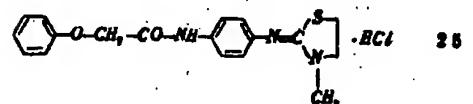
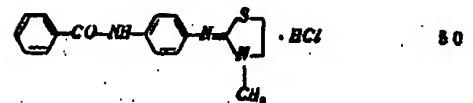


製造例 1



1.1.2.7.10N - (4-カルボキシフェニル) - N - (4-メチル - N - (4-ヒドロキシエチル) - テオ尿素及び3.5 wt%の無水酸を90°Cに30分間加熱した。混合物を冷却して水酸化ナトリウム溶液でアルカリ性とし、分離した油をクロロホルム中に収取させそして蒸発した後に融点127~128°Cの2-(4-カルボキシアミノフェニル) - N - (4-メチル - N - (4-ヒドロキシエチル) - テオ尿素が得られた；融点203~205°C。收率、理論値の94%。

上記の化合物はまた下記の如くしても製造され



(比較用の公知の化合物)



下記の製造例は本発明における化合物の製造を示すものである。

た：2.9.7.10N - (4-カルボキシアミノフェニル) - N - (4-メチル - N - (4-ヒドロキシエチル) - テオ尿素を100 mgの塩化メチレン中に溶解させた。それに12.5 mgの塩化チオニルを滴々添加して混合物を還流下で1時間加熱した。それを真空中で蒸発させると結晶性の N - (4-カルボキシアミノフェニル) - N - (4-メチル - N - (4-ヒドロキシエチル) - テオ尿素が得られた。これを12.5 mlの水と共に還流下で90分間加熱した。混合物を冷却し、水酸化ナトリウム溶液でアルカリ性としそしてエーテル/クロロホルムで抽出し、そして蒸発させして的確エチルから再結晶化した後2.2.8.10の2-(4-カルボキシアミノフェニル) - N - (4-メチル - N - (4-ヒドロキシエチル) - テオ尿素が得られた。收率：理論

NO.3.6.

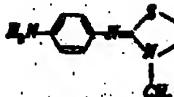
同様にしてTFOのものが得られた：

2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-メチル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-エチル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-ブロピル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-イソブロピル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-エチケチル-ブチル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-アリル-チアソリジン(融点350)、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-メチリル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-

開陽48-36168(23)
)-N-チアソリルアミル-チアソリジン、

2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-メチルアミル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-ブロピルアミル-チアソリジン、
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-チアソリル-チアソリジン、及び
2-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-ブロピルカル-チアソリジン。

融点例 2



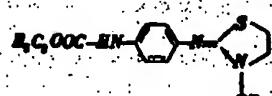
27.9702-(4-カルペトキシアミノフェニルイソノ-
)-N-メチル-チアソリジン及び

13.0℃の濃硫酸を還流下で16時間加熱した。

還流及びエタノール/水からの再結晶化後、

13.870のIR > 370 cm⁻¹の2-(4-アミノフェニルイソノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩が得られ、水酸化ナトリウム溶液を加えるとそれから還結晶塩が得られた。融点13.0~13.1℃(鉱物エチルから再結晶化した)。收率：粗約76.6%。

融点例 3



13.9092-カルボン酸チルエステルを20℃に
おいて13.0℃のエタノール中に溶解されている
28.1702-(4-アミノフェニルイソノ)-

N-メチル-チアソリジンに加え、そして混合物
を0.05CK1時間加熱し、そして真空中で蒸発させた。エタノール/鉱物エチルから再結晶化させ
た後、26.0702-(4-カルペトキシアミノフェニル)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩が
得られた；還結晶塩、融点13.7~13.8℃。收率、
粗結晶の78.5%。

同様にして下記のものが得られた：

2-(4-カルボイソプロポキシアミノフェニルイソノ)-N-メチル-チアソリジン、

2-(4-カルボプロポキシアミノフェニルイソノ)-N-メチル-チアソリジン、

2-(4-カルボイソブロキシアミノフェニルイソノ)-N-メチル-チアソリジン、

2-(4-カルボクロチルオキシアミノフェニルイソノ)-

ルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボメタクリルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボプロピルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボ-(3,3-ジメチルヘキシルオキシ)-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボ-(3-メトキシ-エチルオキシ)-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボシクロプロピルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

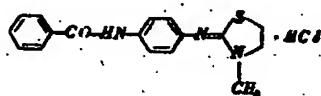
2-(4-カルボシクロブチルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボ-チエニル-3-メトキシ-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボフェノキシ-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。及び

2-(4-カルボ-(4-クロルフェノキシ)-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

製 造 例 4



製造例3中に記されている方法を用いて、150gのエタノール中に溶解している20.7gの

2-(4-カルボシクロベンチルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボシクロヘキシルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボシクロヘキシルチルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボベンゾキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボエチルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボテトラヒドロフルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-カルボフルブリルオキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン及び1.6.9%の塩化ベンゾイルから、

28.6gの2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩、融点27.8°C(分解を伴なり)を生成した。水酸化ナトリウム溶液を加えることにより過酸塩基が得られた。粗融点17.0~17.2°C、ナフタレンジスルホン酸塩、融点29.6°C(分解を伴なり)、(理論値の8.2%)。適当な酸塩化物を用いると同様な方法により下記のものが得られた:

2-[4-(4-クロルベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩酸塩、融点>30.0°C。

2-[4-(3-クロルベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点279~281°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点279~281°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点281~283°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点287°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点279~281°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3,6-ジクロロベンゾイルアミ
ノ)-7-メチル-2-チアソリジン-5-オ

ソン塩酸塩、融点29.5°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3,3-ジクロロベンゾイルアミ
ノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チアソ

リジン塩酸塩、

2-[4-(3,4-ジクロロベンゾイルアミ
ノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チアソ

リジン塩酸塩、

2-[4-(3,3,6-トリクロロベンゾイル
アミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チ

アソリジン塩酸塩、

2-[4-(4-フルオロベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン

塩酸塩、

2-[4-(3-トドロフルオロベンゾイル
アミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チ

アソリジン塩酸塩、融点>300°C。同上48-36169(2)

2-[4-(4-メチルベンゾイルアミノ)-7-
エニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点310°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン塩

酸、融点301~303°C (分解を伴なり)。

2-[4-(4-メトキ-2-フルオロベンゾイ
ルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-チ

アソリジン塩酸塩、

2-[4-(4-ブロムベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン

塩酸、

2-[4-(3,4-ジフルオロベンゾイルア
ミノ)-7-メチル-2-チアソリジン-5-オ

ソン塩酸塩、

2-[4-(3-フルオロ-6-アセチルアミノ
-4-メチル-2-チアソリジン-5-オ

ソン塩酸塩、

2-[4-(4-メチルジベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン

塩酸塩、融点238°C (分解を伴なり)。

2-[4-(3-メチルジベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン

塩酸塩、融点239°C (分解を伴なり)。

2-[4-(2-メチルジベンゾイルアミノ)-
フェニルイミノ]-N-メチル-チアソリジン

塩酸塩、

2-[4-(3-フルオロ-6-メトキベンゾ
イルアミノ)-7-エニルイミノ]-N-メチル-

アソリジン塩酸塩、

2-[4-(2-クロル-4-メトキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(2,3-ジメトキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(3-カルボエトキシアミノ-4-メトキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(4-メチルアミノ-2-メトキシ-ベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(3-ブロキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン

8:

2-[4-(2-メチルスルホニルアミノベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(フェノキシアセチルアミノフェニル)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、融点270°C(分解を伴なり)。

2-[4-(2-フェノキシプロピオカルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(2-フェノキシブチリルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(2-メチルフェノキシ)-アセチルアミノフェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

塩酸塩、

2-[4-(4-エトキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(3,4,5-トリメトキシベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(4-メチルスルホニルベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン塩酸塩、

2-[4-(2-メチルスルホニルベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(3,4-ジメチルベンゾイルアミノ)-フェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(2-メトキシフェノキシ)-アセチルアミノフェニル]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(2-イソプロピルフェノキシ)-アセチルアミノフェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(3,4-ジメチルフェノキシ)-アセチルアミノフェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(3,5-ジメトキシフェノキシ)-アセチルアミノフェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[4-(2-クロルフェノキシ)-アセチルアミノフェニルイミノ]-N-メチル-アソリジン、

2-[(4-(1-ナフトイルアミノ)フェニル)
エチル-アミノ]リジン、

2-[4-(2,4-ジクロルフェノキル)-2-メチルエチルフェノリド]-N-メチル-4-アツリドン、
2-[4-(2-ナフチルフェノリド)-2-メチル-4-アツリドン、
2-[4-(2-ナフチルフェノリド)-2-メチル-4-アツリドン、

8 - [4 - (2 , 3 - 0) = 4 \times 1 + 0] - 8 - (4 - (2 - 1 \times 2 = 2 \times 2 + 2)) - 8 - 2 \times 2 - 4 \times 2 = 8 - 8 - 4 - 8 = 0

2-[(4-シジンナセイルアミノフェニルアミノ)-N-メチル-テアゾリジン]-2-[(4-(1-アトラキルカルボニルアミノ)-2-エトロフェニル)-N-メチル-テアゾリジン]-2-[(2-6-ジクロロシジンナセイルアミノ)-N-メチル-テアゾリジン]

2-〔4-〔3-〔2-〔1-〔カルボニルブリッジ〕〕〕〕〕

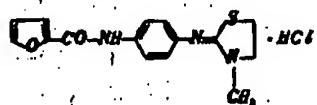
)-722-94121)-N-142-777800 -722-94121)-N-142-777800
-N-142-777800.

2-(4-(2-ヒドロキシ-4-メチルヘキサ-
メチルエチル)-7-エタノラクトン)-N-アミド
-チアソリジン。

3-[(4-(2-ヒドロキシ-3,5-ジクロ
ルベンゾイルテトラヒドロキノリル)-2-エニルエチルエーテル)-N-アミノカルボン酸-4-チオブチリド]ジカルボン酸。

2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-
-N-アミル-チアソリジン、
2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-
-N-エトキル-チアソリジン、
2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-
-N-クロチル-チアソリジン、
2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-
-N-チロチル-チアソリジン及び
2-(4-ベンゾイルアミノフェニルイミノ)-
-N-プロパルギル-チアソリジン。

製造例 8



製造例3に記されている方法を用いて、2.07

g 2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン及び1&7のフラン-カルボン酸クロライドから2.66gの2-(4-(2-アミノカルボニル)-アミノフェニルイミノ)-N-チアル-チアソリジン塩酸塩、融点146~150°C(分解せずに)を生成した(収率65%)。水酸化ナトリウム溶液を加えるとそれから過酸塩が析られた。

同様な方法により下記のものが得られた:

2-[4-(5-メチルイソキサゾリルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-メチル-チアソリジン、
2-[4-(2-ビリジルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、
2-[4-(3-インドラル-アセチル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(3-ビリジルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-メチル-チアソリジン、
2-[4-(4-ビリジルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-メチル-チアソリジン、

2-[4-(2-フルシリカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-メチル-チアソリジン、
2-[4-(2-1インドラカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(2-1インドラカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、
2-[4-(2-チアラフチルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(2-チアラフチルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(4-アチル-3-ビロギル-カルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(3-インドラル-アセチル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、
2-[4-(3-4ノリルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(2-フルシリカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、
2-[4-(2-チエニルアセチル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

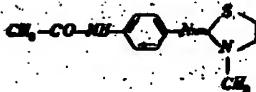
2-[4-(2-ビロギルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、
2-[4-(3-ビロギルカルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

2-[4-(4-アチル-3-ビロギル-カルボニル)-アミノフェニル-イミノ]-N-チアル-チアソリジン、

テル-テトロニン。

2-[4-(3-アセチルカルボニル)-
テル-テトロ-1(1H)-N-2テル-テトロ-
ニン。2-[4-(2-アセチルカルボニル)-
テル-テトロ-1(1H)-N-2テル-テトロニン。2-[4-(4-アセチルカルボニル)-
テル-テトロ-1(1H)-N-2テル-テトロニン。2-[4-(3-アセチルカルボニル)-
テル-テトロ-1(1H)-N-2テル-テトロニン。2-[4-(3-アセチルカルボニル)-
テル-テトロ-1(1H)-N-2テル-テトロニン。

-テル-テトロニン。

2-(4-イソアラントリノフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-ビスロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-テトラヒドロカルボニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-ジロトロイカルボニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-ジメチルカルボニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-ジメチルカルボニル)-
-N-2テル-テトロニン。

融點は既報されている方法によって、103
902-(4-テル-テトロ-1(1H)-N-2-
テル-テトロニン及びその塩化アモニウムから
123.902-(4-テル-テトロ-1(1H)-N-2-
テル-テトロニン塩酸塩を製取
した。融點は50MA170-173℃、吸収
測定値の34.6。

既報の方法によりTEOCOLOD法によれば：

2-(4-テル-テトロ-1(1H)-N-2-
テル-テトロニン。2-(4-テル-テトロ-1(1H)-N-2-
テル-テトロニン)。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。MA19.7
~198℃。2-(4-ビスロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。5
~198℃。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。2-(4-メチロイカルボニルフェニル)-
-N-2テル-テトロニン。

2-(4-メチル-シクロヘキシルカルボニルアミノフエニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(シクロヘキセニル-1-カルボニルアミノフエニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン、及び
2-(シクロヘキセニル-1-カルボニルアミノフエニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

同様にして製造例1に従い炭化マゼンタの代り
Kアルカンスルホン酸クロライドを使用すると下
記のものが得られた：

2-(4-メチルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩、融点
260~262℃(分解を伴なり)。
2-(4-エチルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-シクロヘキシルスルホニルアミノフ
エニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸
塩。

2-(4-シクロヘキシルスルホニルアミノフ
エニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸
塩。

2-(4-シクロヘプタスルホニルアミノフ
エニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸
塩。

2-(4-ドデシルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-ブロビルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-イソブロビルスルホニルアミノフエニ

ルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-イソブロムスルホニルアミノフエニ

ルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-ヘキシルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-トリルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-メタリルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

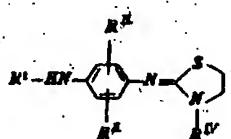
2-(4-クロトニルスルホニルアミノフエニ
ルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

2-(4-シクロプロピルスルホニルアミノフ
エニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸
塩。

2-(4-メチルスルホニルアミノフエニル
イミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

製 造 例 1

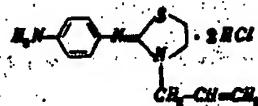
製造例1及び2に記されている方法に従つて下
記のチアソリジン誘導体が得られた：



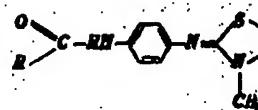
ΔC_{OC}	$3-CI$	I	$Cl.$	BCI 194°C (分離率%2)
ΔC_{OC}	$3-CI$	I	$Cl.$	194-195°C
ΔC_{OC}	$3-CH_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CH_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CH_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CH_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CH_3-CH_2-CH_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-F$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CI$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CI$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-OCB_2$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CH$	I	$Cl.$	
$\Delta C-C-OC$	$3-CF_3$	I	$Cl.$	
CH_3				
ΔC_{OC}	$3-CF_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-CF_3$	I	$Cl.$	
ΔC_{OC}	$3-Br$	I	$Cl.$	
$(CH_3)_2CHCOOC$	$3-Br$	I	$Cl.$	

舞 樂 例 75.

製造例1及び2に記されている方法に従つて、
EPOテアソリシン誘導体塗装塗（融点248℃）
が得られた。



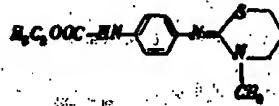
五 五 一 九



7.8%の収率、無水酢酸を20°Cでかいて103.902-(4-7-(ノブエニルイミノ)-8-メチル-9-アツリツインに加え、そして混合物を50~60°Cで1時間加熱した。8.0%の収率をえた。

混合物を真空中で蒸発させ、残渣を水酸化ナトリウム溶液でアルカリ性としてクロロホルムで抽出し、そして蒸発及び蒸留後に沸点₂ 178~182°C 07.9902-(4-ホルミルアミノフェニルイミノ)-メチル-アゾリジン(理論量の67%)が得られた。

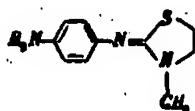
卷之三



製造例1に記されている方法に従い、3.1.1.9
ON-(4-カルボエトキシアノフェニル)-
メチル-メチ-(4-ヒドロキシプロピル)-
-チオ尿素(融点142~143°C)及び1.00
gの塩酸から16.6702-(4-カルボエト

キシフェニルイミノ)-N-メチル-4H-5,6-ジヒドロ-1,3-チアジン(融点178~180°C)が得られた。收率、理論値の57%。

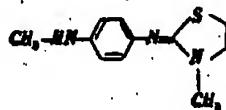
製 造 例 10



400 mlの溶媒中の22.7 g 2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン(融点95~96°C)をPIQ₂の存在下で20°Cにかけて0.3モルの水素が吸収されるまで水素化した。残液を分離し、溶液を真空中で乾燥し、残渣を水中に吸収させ、水酸化ナトリウム溶液を加えそして分離した塩基をエーテル及びクロロホルムの溶液で抽出した。有機相を蒸発させた後、16.5

gの2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン(融点127~128°C)が得られた。收率、理論値の50%。

製 造 例 11



10 gのイソブチルアルデヒドを300 mlのベンゼン中に溶解している20.7 gの2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジンに20°Cにかけて滴々加し、混合物を水分隔離下で2時間加熱し、そして2-(4-イソブチリデン-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジンを真空中で蒸発した(融点117~118°C)。9.7 gの残渣がメチルを150 mlの

ベンゼン中に溶解している14.9 gのこの化合物に加え、混合物を還流下で1時間加熱し、ベンゼンを揮発させ、残渣を30 mlの50%強度のエタノール中に吸収させそしてこの溶液を還流下で1時間加熱した。真空中で蒸発そして水酸化ナトリウム溶液を残渣に加えた後、遊離塩基をエーテルで抽出しそして蒸発した(融点162~165°C)。

同様を方法により下記の化合物が得られた：

2-(4-エチル-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-ブロピルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-ブチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

-N-メチル-チアソリジン。

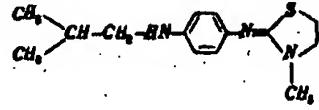
2-(4-アリルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-プロパルギルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

2-(4-クロチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン、及び

2-(4-イソブチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

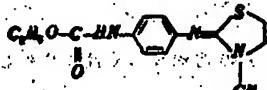
製 造 例 12



250 mlのテトラヒドロフラン中に溶解してい

1-イソブチリデンアミノフェニルイミノ)-N-メチル-テアソリシン 油状としてOAc-C₆H₅を用いて3.0°Cで水素化した。油状を分別してして蒸留した後、1-エトロ-2-(4-イソブチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-テアソリシン(融点170~173°C)が得られた。收率、粗率20.6%。

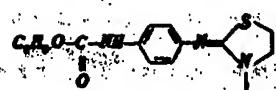
実験例 12



1-Etロ-2-(4-カルボキシメチル-2-エトロテトラヒドロフラン中に溶解している1-エトロ-2-(4-カルボエトキシアミノフェニルイミノ)-テアソリシン(融点146~147°C)を3.0°Cで

水で滴加し、そして混合物を蒸留下で4時間加热した。それを真空下で蒸留させ、粗率をクロロホルム/エーテルの混合物中に収取させ、そしてこの溶液を水で稀釋し抽出し、有機相を蒸留させ、そして酢酸エチルから再结晶化すると、1-エトロ-2-(4-カルボエトキシアミノフェニルイミノ)-N-メチル-テアソリシン(融点177~178°C)が得られた。收率、粗率の3.0%。

実験例 13

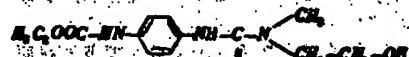


1-Etロ-2-(4-カルボエトキシアミノフェニル)-N-メチル-テアソリシンを100mgの1-エトロ-2-ブロムエタンと共に蒸留下で3.0°Cで

熱した。冷却後に油状を分別し、そして水中に溶解させ、そして溶液をアルカリ性とした。普通に蒸留した後、実験例1に記されている2-(4-カルボエトキシアミノフェニルイミノ)-2-エトロ-テアソリシン(融点137~138°C)が得られた。收率、粗率の20.6%。

本発明における化合物の製造に必要な出発物質の製造法を下記の参考例により説明する。

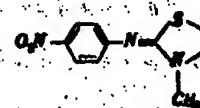
参考例 14



1-Etロ-2-(4-メチルエトロ-2-エトロテトラヒドロフラン中に溶解された2-Etロ-2-(4-カルボエトキシアミノフェニルイミノ)テアソ

リントにまで2.5°Cにおいて溶解しながら加えた。粗率蒸留中に溶解しそして再结晶化した後、2-(4-カルボエトキシアミノフェニル)-N-メチル-2-エトロ-2-(4-エトロテトラヒドロフラン)-テアソリシン(融点130~131°C)が得られた。

実験例 14



1-Etロ-2-(4-メチルエトロ-2-エトロテトラヒドロフラン中に溶解されている1-Etロ-2-(4-カルボエトキシアミノフェニルイミノ)テアソリシンを200mgの1-エトロ-2-ブロムエタンと共に3.0~3.5°Cにおいて溶解しながら加え先、粗率蒸留中に溶解した後、2-(4-エトロフェニル)

-N'-メチル-N'-(β -ヒドロキシエチル)-チオ尿素が得られた。これは直ちにその様の処理を行った。

2&3%のN-(4-ニトロフェニル)-N'-メチル-N'-(β -ヒドロキシエチル)-チオ尿素を100 mlの塩化メチレン中に溶解した。

次に18%の塩化チオニルを滴々添加しそして混合物を還流下で1時間加熱した。それを真空中で蒸発させると結晶性のN-(4-ニトロフェニル)-N'-メチル-N'-(β -クロロエチル)-チオ尿素が強烈として得られた。これを135 mlの水と共に還流下で10分間加熱した。混合物を冷却し、水酸化ナトリウム溶液でアルカリ性とし、そしてエーテル/クロロホルムで抽出し、そして蒸発させ、酢酸エチルから再結晶化した後、

任意にアルコキシ基により置換されていてもよい)又は-COR²もしくは-SQ₂R²基(ここでR²は水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル、アルキニル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アルキニルオキシ、アルコキシアルキルオキシもしくはアルコキシアルキル基(これは任意にハロゲン、トリフルオロメチル、エトドリル、水酸、アシルオキシ、アルコキシ又はオキシ基により置換されていてもよい)、又はシクロアルキル、シクロアルケニルもしくはシクロアルカジエニル基(これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい)、又はシクロアルキルアルキル、ベンゾシクロアルキル、ベンゾシクロアルケニル、エトロ、クロル、ブロム、フルオロ、トリフルオロメチル、エトリル、カルベト

又-(4-ニトロフェニルイミノ)-N'-メチル-チアソリジンが得られた。

本発明の実施例並びに関連事項を以下に記す。

1. 下記一般式の2-(アミノフェニルイミノ)-3-アザ-1-チア-シクロアルカルカン又はそれらの塩である化合物:



(式中、R¹は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキニル基(これは任意にハロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい)であり、そしてR²は水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基(これは

アルキル、テトラヒドロフリル、テトラヒドロフルフリルもしくはテトラヒドロピラニル基(これは任意にアルキル基により置換されていてもよい)、又はトリフルオロメチル基、又はカルバルコキシアルキル基、又はシクロアルコキシ基、又はシクロアルキルアルコキシ基、又はシクロアルコキシ基又はフェニルアルコキシ、フェノキシアルコキシ、フェノキシ、フェニルアルキル、フェニル、フェニルアルケニルもしくはナフチル基(ここで芳香族環は任意に1個もしくはそれ以上のアルキル、アルケニル、アルコキシ、水酸、アシルオキシ、エトロ、クロル、ブロム、フルオロ、トリフルオロメチル、エトリル、カルベト

クロアルキルもしくはシクロアルキルアル
キル基である)であり。

R¹ 及びR² は同一であつても又は異なつ
ていてもよくそしてそれぞれが水素原子、
又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、ア
ルケン基もしくはアルコキシ基、又はヘロ
ゲン、ニトロ基もしくはトリフルオロメチ
ル基であり。

R³ 及びR⁴ はそれぞれ水素原子又はアル
キル基であり、そして
R³ 又はR⁴ である。)

2. R¹ が直鎖又は2のアルキル基又はア
ルキル基もしくはメタキル基もしくはクロアルキル基であり、
R² が直鎖1~3のアルキル基又はアミル、
-COOR³ もしくは-SO₂OR³ にてR³ は水素原子

又は直鎖もしくは枝分れした直鎖数3までOCH₂
基もしくはアルケン基(これは任意にC₂ 又
はメトキシ基により置換されていてもよい)又は
直鎖数3~5のシクロアルキル基、又はフリル、
-CH₂CH₂CH₂CH₂CH₂基、又はメタリル基、
-CH₂CH₂CH₂CH₂CH₂CH₂基、又はアエール基又
は直鎖数4までのアルコキシ基もしくはアルキニル
基(これは任意にメトキシ基により置換さ
れていてもよい)にて、R⁴ が直鎖数1又は2
のOCH₂基である)であり、
R¹ が水素原子であり。

R² が水素又は堿素原子であり、そして

R³ 及びR⁴ が両方とも水素原子で
ある。

上記1に従う化合物。

3. 一般式①の2-(アミノフェニルイミノ)
-3-アミ-1-ナア-シクロアルカンの直鎖

基、ナフタレンジスルホン酸基、ペニエイト(pen-
ate)、アビエナン酸基、スマール酸基、9,9-ト
ノ酸基、ステアリン酸基及びメチルスルホン酸基
である、上記1又は2の化合物。

4. 2-(4-カルバメトキシアミノフェニル
イミノ)-N-メチル-テアソリソニン誘導体の
酸。

5. 2-(4-アミノフェニルイミノ)-N
-メチル-テアソリソニン。

6. 2-(4-ベンゾイリドアミノフェニル
イミノ)-N-メチル-テアソリソニン誘導体の
酸及びナフタレンジスルホン酸。

7. 2-(4-(2-フジルカルボニル)-
アミノフェニルイミノ)-N-メチル-テアソリ
ソニン及びその誘導体。

6. 2-(4-アセチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン及びその塩酸塩。

7. 2-(4-カルペトキシ-3-クロルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

8. 2-(4-カルペトキシ-3-クロルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

9. 2-(4-アミノ-3-クロルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

10. 2-(4-アミノ-3-クロルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

11. 2-(4-カルペトキシフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

12. 2-(4-カルペトキシフェニルイミノ)-N-メチル-4B-5,6-ジヒドロ-1,3-チアソリジン。

13. 2-(4-アミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

14. 2-(4-イソブチルアミノフェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン。

15. 2-(4-(3-クロルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

16. 2-(4-(3-クロルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

17. 2-(4-(3-クロルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

18. 2-(4-(3-メチルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

19. 2-(4-(3-メチルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

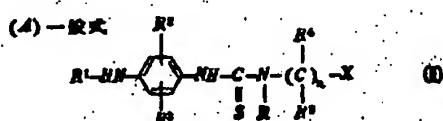
20. 2-(4-(3-メチルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

21. 2-(4-(2,6-ジクロルベンソイルアミノ)-フェニルイミノ)-N-メチル-チアソリジン塩酸塩。

22. 製造例7.中に記されている上記1に従う化合物。

23. 上記6~22のいずれかに記されているもの以外の前記で特に記されている、上記1、2又は3に従う化合物。

24.



特開昭48-36169(6)

及びR¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷

及びR⁸は下記の意味を有しており、そして

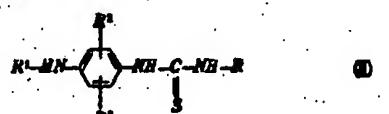
R¹はヘロゲン、スルホニルオキシ又は水酸

基である】

のフェニルチオ尿素を水酸基性溶媒の影響下で又

は酸の影響下で環化するか、或いは

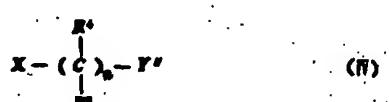
(5)一般式



【式中、R、R¹、R²及びR³はH2Oの意

味を有している】

のフェニルチオ尿素を、一般式



〔式中、R¹、R²及びR³は下記の意味を有してあり、Xは上記(C)中に定義されている。R⁴はアルキル基又はアルコキシ基、R⁵は有機置換基をしており、そしてY¹はエチル基、メチル基をしており、そしてY²はエチル基、メチル基をしており、R⁶は下記の意味を有してある。〕

〔化合物との反応により酸化するか、或は

(d) 一般式



〔式中、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵及びR⁶は下記の意味を有している〕
O2-(アリノフェニルイミノ)-3-アザ-1-アシアシクロアルカンを、一般式

R-A

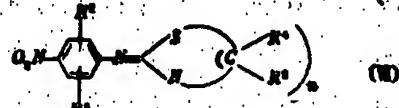
(d)

〔式中、Rは下記の意味を有してあり、そしてY¹は下記の意味を有している〕

特許昭和36.1.8.30(2)
てRはR¹として請求される事である〕

のアルキル化剤と反応させるか、或いは

(e) 一般式



〔式中、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵及びR⁶は下記の意味を有している〕

O2-(アリノフェニルイミノ)-3-アザ-1-アシアシクロアルカンを、一般式



〔式中、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵及びR⁶は下記の意味を有している〕

のアミンを製造し、そしてR¹が水素では無い化

合物が要求されるときには、このアミンを次に、

(e) [R¹が直鎖もしくは枝分れしたアルキ

ル、アルケニル又はアルキル基(これは任

意に1個もしくはそれ以上のヘロゲン又

はアルコキシ基により置換されていてもよ

い)である化合物が要求されるときには、

のオキソ化合物と反応させてシップ塩基を製造し、

一般式

R-A

(e)

〔式中、Rは上記(C)中に定義されている〕

如くであり、そして、R¹は直鎖もしくは

これを次に還元して要求される化合物を製造する

枝分れしたアルキル、アルケニル、又はア

か、或いは

ルキル基(これは任意に1個もしくは2

〔R¹が-COB¹又は-SOB¹基下の有化

個以上)のヘロゲン又はアルコキシ基により

合物が要求されるときには〕

置換されていてよい)である〕

一般式

X-A

(e)

〔式中、 R' は要求に従つて $-COR'$ 又は $-SO_2R'$ 基であり、そして R は BY として除去される基である〕

のアシル化剤又はスルホニル化剤と反応させるか

或いは

(4) [R' が直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキル基 (これは任意に1個もしくはそれ以上のヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい) である化合物が要求されるときには]

脂肪族又は芳香族アルデヒドと反応させてシラフ塩基を与える。これを次に

一般式



(II)

〔式中、 B 及び R^{10} (as) 中で述べられている

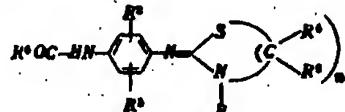
如くである〕

特開昭48-36169(3)

の化合物を用いて塩基酸化しそしてその後アルデヒド基を加水分解的に分離して要求される化合物を単離するか、或いは

(5) [R' 一日である化合物が要求されるときには]

一般式

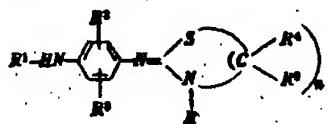


(III)

〔式中、 R 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6

及び R は下記の意味を有している〕

の化合物を加水分解する。一般式



(I)

02-(アミノエニルイミノ)-3-アザ-1-テアシクロアルカン又はそれらの塩である化合物の製造方法。

〔式中、 R は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル又はアルキル基 (これは任意にヘロゲン又はアルコキシ基により置換されていてもよい) であり、そして

R' は水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基 (これは任意にアルコキシ基により置換されていてもよい) 又は $-COR'$ もしくは $-SO_2R'$ 基。〔ここで R' は水素原子又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニル、アルキニル、アルコキシ、アルケニルオキシ、アルキニルオキシ、アルコキシアルキルオキシもしくはアルコキシア

ルキル基 (これは任意にヘロゲン、トリフルオロメチル、ニトリル、水酸、アシルオキシ、アルコキシ又はオキソ基により置換されていてもよい)、又はシクロアルキル、シクロアルケニルもしくはシクロアルカジエニル基 (これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい)、又はシクロアルキルアルキル、ベンゾシクロアルキルアルキル、アトラヒドロフリル、アトラヒドロフリルもしくはアトラヒドロビラニル基 (これは任意にアルキル基により置換されていてもよい)、又はトリフルオロメチル基、又はカルバメルコキシアルキル基、又はシクロアルキルアルコキシ基、又はシクロアルコキシ基又はアトラヒドロフリルアルコキシ基又

はフェニルアルコキシ、フェノキシアルコキシ、フェノキシ、フェニルアルキル、フェニル、フェニルアルケニルもしくはナフテル基（ここで芳香族環は任意に1個もしくはそれ以上のアルキル、アルケニル、アルコキシ、水素、アルキルオキシ、エトロ、クロル、ブロム、フルオロ、トリフルオロメチル、エトリル、カルバトキシ、アルキルスルホニル、アシルアミノ又はアルキルスルホニルアミノ基により置換されていてもよい）、又は複数芳香族環系（これは任意に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）、又はフリルアルキル、チエニルアルキル、イントリルアルキル、フリルアルキルオキシもしくはチエニルアルコキシ基（これは任意

特開昭43-36169(C9)
に1個もしくはそれ以上のアルキル基により置換されていてもよい）又はフェニルアルキル基（ここでアルキル部分は水素、アルキルオキシ、又はアルコキシ基により置換されていてもよい）であり。

そしてR¹は直鎖もしくは枝分れしたアルキルもしくはアルケニル基、又はアラルキル、シクロアルキルもしくはシクロアルキルアルキル基である）であり。

R²及びR³は同一であつても又は異なつてもよい、そしてそれぞれが水素原子、又は直鎖もしくは枝分れしたアルキル、アルケニルもしくはアルコキシ基、又はヘロゲン、エトリルもしくはトリフルオロメチル基である。

1.

R⁴及びR⁵はそれぞれ水素原子又はアルキル基であり、そしてR⁶は2又は3である。）

25. 一般式（Ⅱ）又は（Ⅲ）のテオ尿酸を不活性化剤中で希釈剤の沸点において加熱するとともに蒸発する、上記24（A）又は24（B）に従う方法。

26. Xが塩酸、臭素又はトリフルオロ基である、上記24（A）、24（B）又は25に従う方法。

27. 一般式（Ⅳ）のアルキル化剤及び一般式（V）の化合物を20～80℃において不活性化剤中で反応させる、上記24（C）に従う方法。

28. Rがヘロゲン、アリールスルホニルオキシ又はアルキルスルホニルオキシ基である、上記

24（C）又は27に従う方法。

29. Rが塩素、臭素、ベンゼンスルホニルオキシ又はメチレンスルホニルオキシ基である、上記24に従う方法。

30. 一般式（Ⅳ）の化合物を重金属触媒の存在下で20～80℃にかけてそして60～80kg/cm²圧において水素で還元する、上記24（D）に従う方法。

31. 一般式（Ⅳ）の化合物を水性溶媒中で酸/塩基及び堿化錫を用いて還元する、上記24（D）に従う方法。

32. 一般式（Ⅳ）の化合物を、試剤中で希釈剤の沸点において酸化ナトリウムを用いて還元する、上記24（D）に従う方法。

33. 1モルの一般式（Ⅳ）の化合物より1～

2モルのアルキル化剤を使用し、反応を20~80℃にかけて不活性有機溶媒の存在下で行なう。上記24(D₂₄)に従う方法。

34. Bがヘロゲン、アリールスルホニルオキシ又はアルキルスルホニルオキシ基である、上記24(D₂₄)又は上記30~33のいずれかに従う方法。

35. Bが塩素、臭素、ベンゼンスルホニルオキシ又はメチルスルホニルオキシ基である、上記33に従う方法。

36. 一般式(Ⅷ)のアミン及び一般式Xのオキソ化合物を実験的にセルロで有機溶媒の存在下で反応させる、上記24(D₂₄)又は30~33のいずれかに従う方法。

37. シップ塩基を溶媒の存在下で約20℃及び

固形化する、上記24(D₂₄)又は30~33及び39に従う方法。

41. Bがヘロゲン、アリールスルホニルオキシ又はアルキルスルホニルオキシ基である、上記40に従う方法。

42. Bが塩素、臭素、又はベンゼンスルホニルオキシ基である、上記41に従う方法。

43. 第四級化されたシップ塩基を該塩基分離せずに40~90℃にかけて水性アルコール中で加水分解する、上記34(D₂₄)又は30~33及び39~43のいずれかに従う方法。

44. 一般式(Ⅷ)の化合物を、試薬としての塩酸及び水は水と水溶性アルコールとの混合物の存在下で、溶媒の沸点において加水分解する、上記24(E)に従う方法。

び約1~80ゲージ圧において貴金属触媒を用いて水素により還元する、上記24(D₂₄)又は30~33及び36のいずれかに従う方法。

38. 一般式(Ⅷ)のアルキル化剤又はスルホン化剤及び一般式(X)のアミンを実験的にセルロで20~90℃にかけて不活性有機溶媒中で反応させる、上記(D₂₄)又は30~33のいずれかに従う方法。

39. アルデヒド及び一般式(Ⅷ)のアミンを実験的にセルロで20~40℃にかけて不活性有機溶媒中で反応させてシップ塩基を製造する、上記24(D₂₄)又は30~33のいずれかに従う方法。

40. シップ塩基を60~80℃にかけて不活性有機溶媒中で一般式(Ⅷ)の化合物を用いて第

45. 實験的に製造例1~14のいずれかに記されている如き、上記1に従う化合物の製造方法。

46. 上記24~45のいずれかに従う方法により製造された上記1に従う化合物。

47. 活性成分として上記1~21及び23又は45のいずれかに従う化合物を固体もしくは液化された液体の着色剤と混合して、又は液化活性成分の存在した場合を除いて200より小さい分子の溶媒以外の液体着色剤と混合して含有している医薬組成物。

48. 活性成分として上記1~21及び23又は45のいずれかに従う化合物を無色のもしくは半

49. 活性の水溶液の形狀で含有している医薬組成物。

50. 0.5~90重量%の活性成分を含してい、上記47又は48に従う組成物。

44. 實質的に前記されているか又は特に例示されている如き医薬成物。

45. 上記1~21、23又は46のいずれかに従う化合物を单独で又は希釈剤と混合して含有している服用単位形の薬物。

46. 上記1~21、23又は46のいずれかに従う化合物を单独で又は希釈剤と混合して含有している錠剤、丸薬、糖衣丸、カプセル、アンプル又は錠剤の形状の薬物。

47. 50~5000mgの1日の服用に適するよう本上記51又は52に従う服用単位形の薬物。

48. 實質的に前記されているか又は特に例示されている如き、服用単位形の薬物。

49. 人間及び非人間動物に上記1~21、23又は46のいずれかに従う活性化合物を单独で又

開 48-26169(41)
は、試剤と混合して、又は上記51~54のいずれかに従う成形物の形で投与する、人間及び非人間動物中の寄生虫を撲滅する方法。

50. 寄生虫が蠕虫である、上記55に従う方法。

51. 寄生虫が瘧虫である、上記56に従う方法。

52. 活性化合物を1日当たり1~100mg/1kgの体重の量で投与する、上記55、56又は57に従う方法。

53. 實質的に前記されているか又は特に例示されている如き、寄生虫の撲滅方法。

特許出願人 バイエル・アクテングゼルシヤフト

代理人 ベルト・小田島 平吉

5. 郵付書類の目録

1. 男 級 書	1通
2. 賛任状及びその訳文	各 1通
該証明書及びその訳文	各 1通
該書、法人証明書並びにこれらの訳文	各 1通
3. 優先権証明書及びその訳文	各 1通
	3行削除

6. 前記以外の発明者、特許出願人または代理人

(1) 発明者
名 前 オーストラリアン・クイーンズランド・ビーンレイ 4207
姓 所 ボンクス 59・バーレムヒル・クエナリーリザーブ
姓 名 ブラーサーン・スティーブン
姓 名 ウィンスリー・フルング
姓 前 ドイツ・グラーベーツル・エルバーフェルト・ヴィグ
姓 名 トリアストラフセ 64
姓 名 ハンス・ベーター・シュルツ
姓 前 ドイツ・ハーベーツル・エルバーフェルト
姓 名 ベルタル・ハイデ 68
姓 前 ヘルベルト・トーマス
姓 名

(2) 特許出願人

名 前
姓 所
姓 名
(氏名)
代成書
姓 前
姓 名
(3) 代 理 人
名 前 東京都港区赤坂1丁目9番15号
姓 所 日本・日本販賣会社
姓 名